

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number : 11-256106

(43) Date of publication of application : 21. 09. 1999

(51) Int. Cl.

C09D183/16  
C08G 77/60  
H01L 21/316

(21) Application number : 10-056289 (71) Applicant : HITACHI CHEM CO LTD

(22) Date of filing : 09. 03. 1998 (72) Inventor : ENOMOTO KAZUHIRO  
MORISHIMA HIROYUKI  
NARITA TAKENORI  
NOBE SHIGERU  
YAMAMOTO YASUHIRO  
WATANABE AKIRA  
ITO OSAMU

(54) COATING LIQUID FOR SILICA-BASED FILM FORMATION, PRODUCTION OF SILICA-BASED FILM, SILICA-BASED FILM AND SEMICONDUCTOR DEVICE

(57) Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain the subject coating liquid capable of lessening volatility during baking, while having heat resistance, having a low dielectric constant of the film therefrom and excellent storage stability at room temperature, by including a specific polysilane and an organic solvent.

SOLUTION: This coating liquid is obtained by including an organic solvent and a polysilane having 1-100%, based on the total number of silicon atoms, of a group expressed by the formula  $R_4O$  and prepared by reacting 30-100 mol.% of a monoorganotrihalosilane compound expressed by the formula,  $R_1SiX_3$  ( $R_1$  is a 1-6C alkyl or the like;  $X$  is a halogen) [e.g.  $CH_3Si(Cl)_3$ ] with 70-0 mol.% of a diorganohalosilane compound expressed by the formula,  $R_2R_3SiX_2$  ( $R_2$  and  $R_3$  are each a 1-6C alkyl or the like) [e.g.  $(CH_3)_2Si(Cl)_2$ ] and then reacting the resulting halogen-containing polysilane with a compound expressed by the formula,  $R_4OH$  ( $R_4$  is a 1-6C alkyl or the like) (e.g. alcohol, phenol compound, silanol compound).

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's  
decision of rejection][Kind of final disposal of application  
other than the examiner's decision of  
rejection or application converted  
registration][Date of final disposal for  
application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-256106

(43) 公開日 平成11年(1999) 9月21日

(51) Int.Cl.<sup>6</sup>

識別記号

F I

C 0 9 D 183/16

C 0 9 D 183/16

C 0 8 G 77/60

C 0 8 G 77/60

H 0 1 L 21/316

H 0 1 L 21/316

G

P

審査請求 未請求 請求項の数 4 O L (全 6 頁)

(21) 出願番号

特願平10-56289

(22) 出願日

平成10年(1998) 3月9日

(71) 出願人 000004455

日立化成工業株式会社

東京都新宿区西新宿 2 丁目 1 番 1 号

(72) 発明者 榎本 和宏

茨城県日立市東町四丁目13番 1 号 日立化

成工業株式会社山崎工場内

(72) 発明者 森嶋 浩之

茨城県日立市東町四丁目13番 1 号 日立化

成工業株式会社山崎工場内

(72) 発明者 成田 武憲

茨城県日立市東町四丁目13番 1 号 日立化

成工業株式会社山崎工場内

(74) 代理人 弁理士 若林 邦彦

最終頁に続く

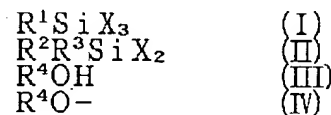
(54) 【発明の名称】 シリカ系被膜形成用塗布液、シリカ系被膜の製造法、シリカ系被膜及び半導体装置

(57) 【要約】

【課題】 耐熱性を有しつつ、焼成中の揮発を少なくし、被膜の誘電率が低く、かつ室温における保存安定性に優れたシリカ系被膜形成用塗布液、これを用いるシリカ系被膜の製造法、この方法により得られるシリカ系被膜および半導体装置を提供する。

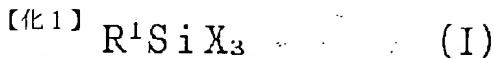
【解決手段】 下記一般式 (I) で表されるモノオルガノトリハロシラン化合物 30～100モル%と下記一般式 (II) で表されるジオルガノジハロシラン化合物を 70～0モル%反応させ、得られたハロゲン含有ポリシランに下記一般式 (III) で表される化合物反応させて得られ、一般式 (IV) で表される基を珪素原子の総数に対して 1～100%有するポリシランと有機溶媒を含有してなるシリカ系被膜形成用塗布液、この塗布液を、基体表面上に塗布後、50～250℃で乾燥し、ついで水蒸気又は酸素の存在下において 300～500℃で焼成することを特徴とするシリカ系被膜の製造方法、この方法により得られるシリカ系被膜及びこの被膜を用いた半導体装置。

【化 1】

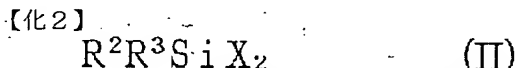


## 【特許請求の範囲】

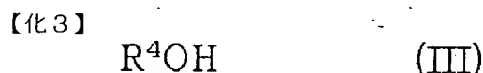
## 【請求項1】 一般式 (I)



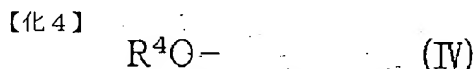
(ただし、式中R1は炭素数1～6のアルキル基、アルケニル基、アリール基、フルオロアルキル基又はフルオロアリール基を示し、Xはハロゲンを示す) で表されるモノオルガノトリハロシラン化合物30～100モル%と一般式 (II)



(ただし、式中、R2及びR3は、それぞれ独立に炭素数1～6のアルキル基、アルケニル基、アリール基、フルオロアルキル基又はフルオロアリール基を示し、Xはハロゲンを示す) で表されるジオルガノジハロシラン化合物を70～0モル%反応させ、得られたハロゲン含有ポリシランに一般式 (III)



(ただし、式中、R4は炭素数1～6のアルキル基、アルケニル基、アリール基を示す) で表される化合物反応させて得られ、一般式 (IV)



(ただし、式中をR4は一般式 (III) に同じ) で表される基を珪素原子の総数に対して1～100%有するポリシランと有機溶媒を含有してなるシリカ系被膜形成用塗布液。

【請求項2】 請求項1記載の塗布液を、基体表面上に塗布後、50～250℃で乾燥し、ついで水蒸気又は酸素の存在下において300～500℃で焼成することを特徴とするシリカ系被膜の製造方法。

【請求項3】 請求項2記載の方法により得られるシリカ系被膜。

【請求項4】 請求項3記載の被膜を用いた半導体装置

【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、シリカ系被膜形成用塗布液、シリカ系被膜の製造法、シリカ系被膜及び半導体装置に関し、更に詳しくは熱的に安定でかつ成膜性の良好なシリカ系被膜形成用塗布液、これを用いるシリカ系被膜の製造法、シリカ系被膜及び半導体装置に関する。

## 【0002】

【従来の技術】従来、IC、LSI等の半導体素子の層間絶縁膜に、耐熱性の良好なポリシランを用いる方法が知られており、ポリジメチルシリレンのようなメチル基を有するポリシラン重合体を塗布し、酸素と窒素の混合ガス雰囲気下で焼成してシリカ系被膜を形成する方法が

提案されている(特開平7-235532号公報参照)。

しかしながら、この方法のようにポリシラン重合体が有機置換基だけを有する場合、ポリマー分子間の架橋反応が起こりにくく、焼成中の揮発による急激な膜厚減少が起こるといった問題がある。また、デバイスの微細化に伴い、多層配線における層間絶縁膜の誘電率が高いことによる配線層間の容量増加、配線の信号電波遅延等が問題となっている。

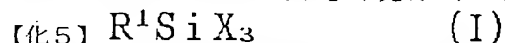
【0003】一般に用いられている層間絶縁膜、例えばBPSG(ボロン-フォスフォシリケートガラス)、P-TEOS(プラズマ-テトラエトキシシラン)、SOG(スピニオンガラス)等の絶縁膜は比誘電率(ε)が通常4以上と高く、層間絶縁膜の誘電率を低くすることが要望されている。誘電率を低くする手法として、層間絶縁膜材料の構成分子間の分極を下げることが考えられるが、フェニル基などの有機置換基はそれ自身の分極率が低いので、これを分子内に導入する方法が有効である。

## 【0004】

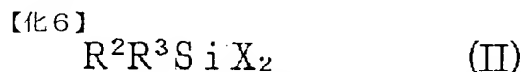
【発明が解決しようとする課題】本発明は、耐熱性を有しつつ、焼成中の揮発を少なくし、被膜の誘電率が低く、かつ室温における保存安定性に優れたシリカ系被膜形成用塗布液、これを用いるシリカ系被膜の製造法、この方法により得られるシリカ系被膜および半導体装置を提供するものである。

## 【0005】

【課題を解決するための手段】本発明は、一般式 (I)



(ただし、式中R1は炭素数1～6のアルキル基、アルケニル基、アリール基、フルオロアルキル基又はフルオロアリール基を示し、Xはハロゲンを示す) で表されるモノオルガノトリハロシラン化合物30～100モル%と一般式 (II)



(ただし、式中、R2及びR3は、それぞれ独立に炭素数1～6のアルキル基、アルケニル基、アリール基、フルオロアルキル基又はフルオロアリール基を示し、Xはハロゲンを示す) で表されるジオルガノジハロシラン化合物を70～0モル%反応させ、得られた塩素含有ポリシランに一般式 (III)

## 【化7】



(ただし、式中、R4は炭素数1～6のアルキル基、アルケニル基、アリール基を示す) で表される化合物反応させて得られ、一般式 (IV)

## 【化8】



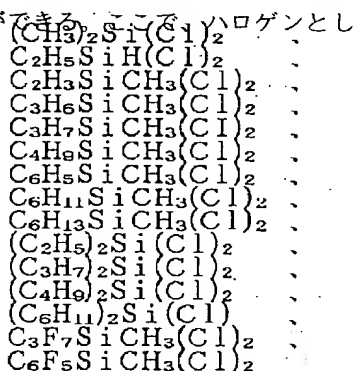
(ただし、式中をR4は一般式 (III) に同じ) で表され

る基を珪素原子の総数に対して1～100%有するポリシランと有機溶媒を含有してなるシリカ系被膜形成用塗布液に関する。

【0006】本発明は、また、このシリカ系被膜形成用塗布液を、基体表面上に塗布後、50～250℃で乾燥し、ついで水蒸気又は酸素の存在下において300～500℃で焼成することを特徴とするシリカ系被膜の製造方法に関する。本発明は、また、この方法により得られるシリカ系被膜に関する。本発明は、また、この被膜を用いた半導体装置に関する。

【0007】

【発明の実施の形態】本発明に用いられるポリシランは、前記したモノオルガノトリハロシラン及び必要に応じて使用されるジオルガノジハロシランの脱ハロゲン縮合反応より製造することができる。ここで、ハロゲンとし



などが挙げられる。ジオルガノジクロロシランは、一種類に限らず二種類以上混合して用いてもよい。

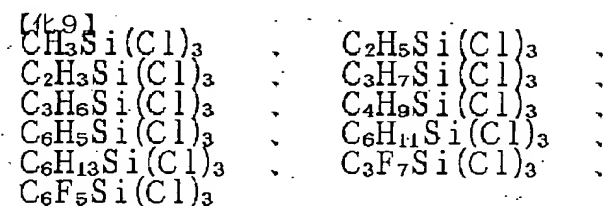
【0010】ポリシランの製造法としては、公知であるウルツ型反応を用いることができる。ウルツ型反応は金属の存在下に乾燥不活性ガス雰囲気下で行うのが好ましく、不活性ガスとしては窒素またはアルゴンが挙げられる。また、脱塩素縮合に使用される金属としては、アルカリ金属、アルカリ土類金属等の金属が用いられ、具体的には、Li、Na、K、Mgなどが挙げられる。

【0011】また、反応に用いられる溶媒は、炭化水素、エーテルなどの脱塩素縮合に用いる触媒に対して不活性な溶媒であればよく、具体的には、ヘキサン、オクタン、トルエン、キシレン、テトラヒドロフランなどが挙げられる。

【0012】本発明におけるポリシランは、次のようにして製造することができる。まず、上記金属を含む有機溶媒中に、モノオルガノトリハロシラン30～100モル%（好ましくは、70～100モル%）及びジオルガノジハロシラン70～0モル%（好ましくは、30～0モル%）を含むモノマーを滴下して反応させ、ハロゲンを有するポリシラン（以下、「前駆ポリマー」という）を製造する。このとき、ジオルガノジハロシランの使用量が多すぎるとポリシランの収率が低下する傾向がある。このときの金属の使用量は、モノオルガノトリハロシランとジオルガノジハロシランの総量に対して、1、

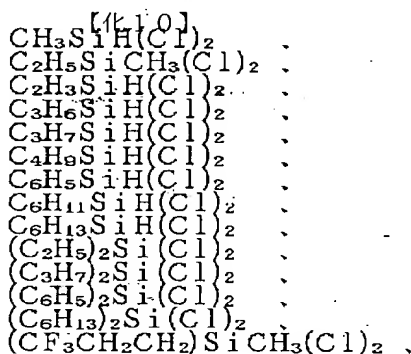
ては、すなわち、一般式（I）又は一般式（II）においてXは、塩素、臭素等がある。

【0008】モノオルガノトリクロロシランとして具体的には



などが挙げられる。モノオルガノトリクロロシランは、一種類に限らず二種類以上混合して用いてもよい。

【0009】ジオルガノジクロロシランとして具体的には



5～5倍モルが好ましい。また、反応温度は0～140℃が好ましい。

【0013】反応後副成する金属塩や未反応の金属を遠心分離等により反応液から除去し、さらに、反応液に一般式（III）で表される化合物を前駆ポリマー中の未反応のハロゲン原子を一般式（IV）で置換するのに充分な量（例えば、原料のモノオルガノトリクロロシランとジオルガノジクロロシランの総量に対して0.01～1倍モル（好ましくは0.01～0.4倍モル）の一般式（III）で表される化合物を添加し、好ましくは0～50℃で反応させることにより本発明におけるポリシランを製造することができる。ハロゲン原子を残しておくと、反応性が高いため空気中の湿気を吸湿することによる室温下での急激的な架橋反応が起こったり誘電率を高くする原因となるため好ましくない。

【0014】一般式（III）で表される化合物として、アルコール、フェノール化合物、シラノール化合物などが好ましく、具体的には、メタノール、エタノール、プロパノール、ブタノール、ヘキサノール、シクロヘキサノール、フェノール、トリメチルシラノールなどが挙げられる。これらは、一種類に限らず二種類以上混合して用いてもよい。

【0015】また、反応中ポリマの収率を向上するために金属の層間触媒を用いることができる。金属の層間触媒として具体的には、18-クラウン-6-エーテル、

12-クラウン-4-エーテル、15-クラウン-5-エーテル等のクラウンエーテルなどが挙げられる。触媒量は制限されないが、金属に対して0.01~0.3倍モル量であることが好ましい。

【0016】本発明におけるポリシランは、前記したように前駆ポリマー中の未反応のハロゲン原子を前記一般式(IV)で表される基に置換するが、この結果、前記一般式(IV)で表される基は、通常、本発明のポリシラン分子中に、その分子中の珪素原子の数に対して、1~100%、好ましくは1~40%含まれることになる。

【0017】本発明におけるポリシランの数平均分子量(ゲルパーミエーションクロマトグラフィーにより、標準ポリスチレンの検量線を用いて測定したもの)は、200~500,000であり、好ましくは1,000~10,000である。分子量が大きすぎると塗布作業時にゲル化する可能性があり、分子量が小さすぎると方正中に揮発してしまうことがある。

【0018】ポリシランは溶媒に溶解して使用する。使用する溶媒として、ポリシランを溶解できる溶媒であれば制限はない。具体的には、ヘキサン、オクタン、キシレン、トルエン、テトラヒドロフラン、ジブチルエーテル、ジエチルエーテルなどが挙げられる、また、一種類に限らず二種類以上混合して用いてもよい。ポリシランの濃度は、適宜決定されるが、5~20重量%であることが好ましい。

【0019】次に、このようにして得られた塗布液を用いてシリカ系被膜を形成するには、該塗布液をガラス、セラミックス、シリコンウエハー、回路の形成されたシリコンウエハー等の基板に、浸漬法、回転塗布法等の方法で塗布した後、好ましくは50~250℃、より好ましくは120~230℃で予備硬化し、ついで、好ましくは300~500℃で水蒸気又は酸素の存在下に焼成する。予備硬化は、30秒~5分間、焼成は10~60分間行うことが好ましい。このような方法により、本発明シリカ系被膜形成用塗布液を用いて形成したシリカ系被膜は、成膜性も良好で、しかも誘電率も低くなる。このシリカ系被膜を配線層間膜(絶縁層間膜)として半導体素子を得ることができる。

【0020】本発明の半導体装置の製造工程の一例を以下に説明する。図1は、多層配線構造の半導体装置の製造工程図である。図1において、回路素子を有するシリコンウエハー、ガラス板、金属板などの半導体基板1は、回路素子の所定部分を除いてシリコン酸化膜等の保護膜2で被覆され、露出した回路素子上に第1導体層3が形成されている。該半導体基板上に前述したポリシラン塗布液がスピナー法などで塗布され、熱処理による溶媒の除去、及び水蒸気または酸素雰囲気下での焼成によるポリシランの酸化反応で、層間絶縁膜としてポリシロキサン膜からなる層間絶縁膜4が形成される(工程(a))。

【0021】次に、塩化ゴム系またはフェノールノボラック系の感光性樹脂層5が前記層間絶縁膜4上にスピナー法によって形成され、公知の写真食刻技術によって所定部分の層間絶縁膜4が露出するように窓6Aが設けられる(工程(b))。

【0022】窓6Aの層間絶縁膜4は、四フッ化炭素等のフッ素系ガスを用いるドライエッチング手段によって選択的にエッチングされ、窓6Bが開けられる。次いで窓6Bから露出した第1導体層3を腐食することなく感光樹脂層5のみを腐食するようなエッチング溶液を用いて感光樹脂層5が完全に除去される(工程(c))。

【0023】さらに、公知の金属膜形成法及び写真食刻技術を用いて第2導体層7を形成させ、第1導体層3との電気的接続が完全に行われる(工程(d))。

【0024】3層以上の多層配線構造体を形成する場合は、上記の工程を繰り返して行い各層を形成する。すなわち導体層の上に絶縁層となる層間絶縁膜を形成する工程(a)、この被膜の所定の場所を選択的に除去し窓を開口して下部に存する導体層の所定部分と接続された上部の導体を形成する工程(d)を繰り返すことになる。また、このようにして作製される多層配線構造体の表面には、ポリイミド樹脂等の有機材料又は窒化ケイ素等の無機材料からなる表面保護層が形成される。表面保護層には場合により所定部分に上記窓6A、6Bと同様の窓を開けてもよい。半導体装置全体は、通常、エポキシ樹脂等を含む封止材により封止される。

【0025】本発明において、ポリシランは、縮合反応を起こすアルコキシ基などの置換基を有し、また、有機置換基の含有量が比較的多くしてあるので、得られるシリカ被膜、耐熱性に優れると共に、焼成によりポリマ間の架橋反応が促進されるため焼成中の揮発を少なくすることができ、また、誘電率を低くすることができる。

【0026】

【実施例】以下、本発明の実施例を説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

実施例1

滴下ロート、還流管、温度計及びメカニカルスターラを取り付けた四つ口フラスコ内にナトリウム6.43g(下記フェニルトリクロロシランに対して3.5倍モル)、脱水トルエン180ml、ナトリウムに対して0.05倍モルの18-クラウン-6-エーテルを入れ、乾燥窒素で十分置換した後、110℃で2時間加熱還流をした。

【0027】次に、フェニルトリクロロシラン16.92gを脱水トルエン20mlで薄めたものを滴下ロートに入れ、1時間で滴下し重合反応を行った。重合反応後、未反応のナトリウムと副生した塩化ナトリウムを遠心分離により取り除いてポリシランのトルエン溶液を得た。さらにその溶液中にメタノール6.5g(上記フェニル

乾燥室中で一昼夜反応した。次に、その溶液を大過剰なメタノール中に投入し、沈殿したポリマーを取り出したところ6. 20 g (収率73. 8%) のポリマー (ポリシラン) が得られた。ポリマーの数平均分子量 (ゲルパーミエーションクロマトグラフィーにより、標準ポリスチレンの検量線を用いて測定したもの、以下同じ) は、1500であった。また、水素核磁気共鳴スペクトル ( $^1\text{H-NMR}$ ) により調べたところ、得られたポリシラン中、メトキシ基は、Si の総数に対して30%存在していた。

【0028】得られたポリシラン化合物1. 5 g にトルエン815 g を加えて溶解し、塗布液を作製した。これをウエハ上に回転塗布し、窒素中、ホットプレートで90℃で3分間、次いで230℃で3分間加熱し、予備硬化した。次に石英炉の中に入れ、酸素中400℃で30分間焼成し、シリカ系被膜からなる硬化膜を得た。周波数10 kHzにおけるキャパシタンス測定より作製した硬化膜の比誘電率を求めたところ、2. 9であった。また硬化膜を再度窒素中400℃で加熱しても膜厚減少は見られなかった。

【0029】また、溶液を、室温下2カ月間放置しても、ゲルパーミエーションクロマトグラフィーで確認したところ、ポリシランの分子量の増加はほとんど見られず、溶液安定性に優れるものであった。

【0030】上記で得られたポリシラン150重量部に、トルエン850重量部を加えて室温で均一に混合、溶解させ、ポリシラン樹脂溶液を得た。この溶液を、第1図の工程 (a) においてシリコン酸化膜2と第1導体層3としてアルミニウムを用いたガラス板の半導体基板1上に回転数1300 rpmでスピナー塗布した。引き続いて、ホットプレートにて150℃で30分予備硬化し、次いで、酸素雰囲気下に300~400℃で30分間熱処理を行い層間絶縁膜層4を形成した。次に該絶縁膜層4の所定部分のみを選択的に除去するため、該層4上にフェノールノボラック樹脂系の感光性樹脂 (ポジ型ホトレジスト、AZ-1350Jヘキスト社製) 層5を回転数3000 rpmのスピナー塗布して形成し、公知の写真食刻技術によって露光した後、水酸化テトラメチルアンモニウム水溶液系の現像液 (NMD-3、東京応化(株)製) でレジストを現像し、窓6Aをあけ、ついで公知のドライエッチング技術で、前記絶縁膜層4を選択的にエッチングし、窓6Bをあけ、第1導体層3をこの部分で露出させた。しかるのち第1導体層3を腐食することなく感光樹脂層5のみを食刻するレジスト剥離液 (アセトン) を用いて室温下で2分間浸漬処理し、感光樹脂層5を完全に除去し、膜厚約1  $\mu\text{m}$  のポリシラン硬化膜 (ポリシロキサン、シリカ系被膜) を得た。さらに公知の真空蒸着法、スパッタ法および写真食刻技術を用いてアルミニウムの第2導体層7を形成し、第1導体層3との電氣的接続を完全に行った。

【0031】このようにして得られた多層配線構造体上にポリイミド樹脂溶液 (PIX-1400、日立化成工業株式会社商品名) を構造体の表面に回転数2800 rpmで30秒間スピナー塗布し、140℃で60秒間予備硬化を行い、最終的に350℃で4分間最終硬化して表面保護膜層を形成し、半導体装置を作製した。

#### 【0032】実施例2

滴下ロート、還流管、温度計及びメカニカルスターラを取り付けた四つ口フラスコ内にナトリウム6. 07 g

(下記フェニルトリクロロシラン及びジフェニルジクロロシランの総量に対して3. 3倍モル)、脱水トルエン180 ml、ナトリウムに対して0. 1倍モルの18-クラウン-6-エーテルを入れ、乾燥窒素で十分置換した後、110℃で2時間加熱還流をした。次に、フェニルトリクロロシラン13. 54 gとジフェニルジクロロシラン4. 05 gを脱水トルエン20 mlで薄めたものを滴下ロートに入れ、1時間で滴下し重合反応を行った。重合反応後、未反応のナトリウムと副生した塩化ナトリウムを遠心分離により取り除いてポリシランのトルエン溶液を得た、さらにその溶液中にメタノール6. 5 g (上記フェニルトリクロロシラン及びジフェニルジクロロシランの総量に対して等モル) を投入し、室温、乾燥窒素中で一昼夜反応した。次に、その溶液を大過剰なメタノール中に投入し、沈殿したポリマーを取り出したところ5. 10 g (収率53%) のポリシランが得られた。このポリシランの数平均分子量は、1100であった。また、水素核磁気共鳴スペクトル ( $^1\text{H-NMR}$ ) により調べたところ、得られたポリシラン中、メトキシ基は、Si の総数に対して15%存在していた。

【0033】上記ポリシラン化合物1. 5 g にトルエン8. 5 gを加えて溶解し、塗布液を作製した。これをウエハ上に回転塗布し、窒素中、ホットプレートで120℃で3分間、次いで230℃で3分間加熱して予備硬化した。次に石英炉の中に入れ、酸素中300℃で30分間、さらに窒素中400℃で30分間焼成して、シリカ系被膜からなる硬化膜を得た。周波数10 kHzにおけるキャパシタンス測定より作製した硬化膜の比誘電率を求めたところ、2. 5であった、また、硬化膜を再度窒素雰囲気下400℃で加熱しても膜厚減少は見られなかった。また、溶液を、室温下2カ月間放置しても、ゲルパーミエーションクロマトグラフィーで確認したところ、ポリシランの分子量の増加はほとんど見られず、溶液安定性に優れるものであった。さらに、前記実施例1で得られたポリシランの代わりに本実施例 (実施例2) で得られたポリシランを使用すること以外は実施例1と同様にして半導体装置を作製した。

#### 【0034】比較例1

重合反応までは、実施例1に準じて行った。重合反応後、未反応のナトリウムと副生した塩化ナトリウムを遠心分離により取り除いてポリシランのトルエン溶液を得

た。さらにその溶液を濃縮してポリマー濃度15重量%になるように調製し、その後室温で1週間放置したところゲル化した。得られたポリシランのトルエン溶液を用いてゲル化する前にウエハ上に回転塗布し、窒素中、ホットプレートで90℃で3分間、次いで230℃で3分間予備硬化した。次に石英炉の中に入れ、酸素中300℃で30分焼成し、シリカ系被膜からなる硬化膜を得た。周波数10kHzにおけるキャパシタンス測定より作製した硬化膜の比誘電率を求めたところ、3.9であった。

#### 【0035】比較例2

ドデカメチルシクロヘキサシラン1.5gにトルエン8.5gを加えて溶解し、塗布液を作製した。これをウエハ上に回転塗布し、窒素中ホットプレートで90℃3分間次いで230℃3分間予備硬化した。次に石英炉の中に入れ、酸素中400℃30分間焼成したところ、ポリマーが揮発し、予備硬化直後の膜厚の半分以下となった。

#### 【0036】

【発明の効果】請求項1におけるシリカ被膜形成用塗布液は成膜性に優れ、貯蔵安定性に優れ、シリカ系被膜を形成することができる。請求項2における方法により熱的に安定なシリカ被膜を得ることができる。請求項3におけるシリカ被膜は熱的に安定である。請求項4における半導体装置の層間絶縁膜は熱的に安定であり、従って半導体装置として信頼性が高い。

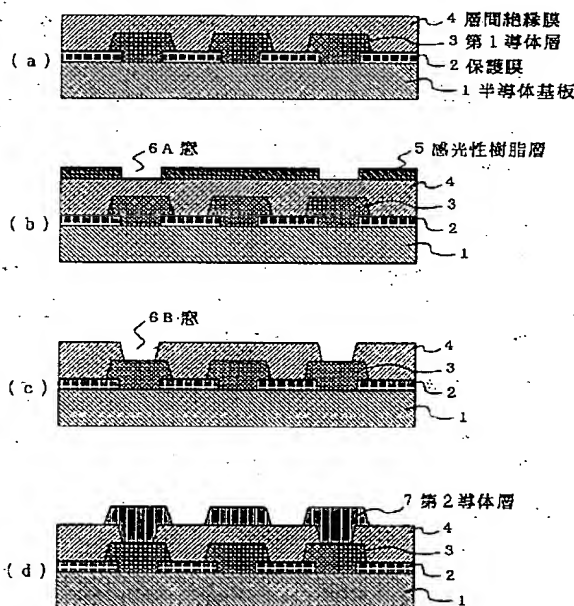
#### 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の半導体装置の製造工程の一例を示す工程図である。

#### 【符号の説明】

- 1 半導体基板
- 2 保護膜
- 3 第1導体層
- 4 層間絶縁膜
- 5 感光性樹脂層
- 6A、6B 窓

【図1】7 第2導体層



フロントページの続き

(72)発明者 野部 茂

茨城県日立市東町四丁目13番1号 日立化成工業株式会社山崎工場内

(72)発明者 山本 靖浩

茨城県日立市東町四丁目13番1号 日立化成工業株式会社山崎工場内

(72)発明者 渡辺 明

宮城県仙台市青葉区元支倉35-3-203

(72)発明者 伊藤 攻